

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>C08K 5/5313, 5/34, C08L 67/00</b></p>	<p><b>A1</b></p>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 97/39053</b></p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 23. Oktober 1997 (23.10.97)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: <b>PCT/EP97/01664</b></p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 2. April 1997 (02.04.97)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 196 14 424.8      12. April 1996 (12.04.96)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): CLARI- ANT GMBH [DE/DE]; Brünigstrasse 50, D-65929 Frank- furt am Main (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und</p> <p>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): JENEWEIN, Elke [DE/DE]; Maienstrasse 15, D-86368 Gersthofen (DE). KLEINER, Hans-Jerg [DE/DE]; Altkönigstrasse 11a, D-61476 Kron- berg (DE). WANZKE, Wolfgang [DE/DE]; Mendelstrasse 11a, D-86405 Meitingen (DE). BUDZINSKY, Winfried [DE/DE]; Robert-Stolz-Strasse 44, D-65812 Bad Soden (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, CA, JP, KR, NO, SG, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>	
<p>(54) Title: SYNERGISTIC FLAME PROTECTION AGENT COMBINATION FOR THERMOPLASTIC POLYMERS</p> <p>(54) Bezeichnung: SYNERGISTISCHE FLAMMSCHUTZMITTEL-KOMBINATION FÜR THERMOPLASTISCHE POLYMERE</p> <p>(57) Abstract</p> <p>The present invention relates to a synergistic flame protection agent combination for thermoplastic polymers, preferably technical plastics, especially for polyesters, containing as component A a phosphinic acid salt of the formulae (I) defined in the description and/or diphosphinic acid salt of the formula (II) and/or their polymers and as component B a nitrogen compound of the formulae (III) to (VIII) defined in the description or a mixture of the compounds corresponding to said formulae.</p> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf eine synergistische Flammenschutzmittel-Kombination für thermoplastische Polymere, bevorzugt technische Kunststoffe, insbesondere für Polyester, die als Komponente A ein Phosphinsäuresalz der in der Beschreibung definierten Formeln (I) und/oder ein Diphosphinsäuresalz der Formel (II) und/oder deren Polymere enthält, und die als Komponente B eine Stickstoffverbindung der in der Beschreibung definierten Formel (III) bis (VIII) oder ein Gemisch der durch die Formeln bezeichneten Verbindungen enthält.</p>		

## Beschreibung

### Synergistische Flammenschutzmittel-Kombination für thermoplastische Polymere

Die Erfindung betrifft eine synergistische Flammenschutzmittel-Kombination, die Calcium-, Aluminium- oder Zinkphosphinate und bestimmte synergistisch wirkende stickstoffhaltige Verbindungen enthält.

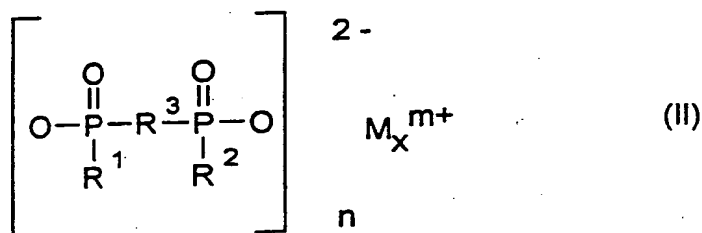
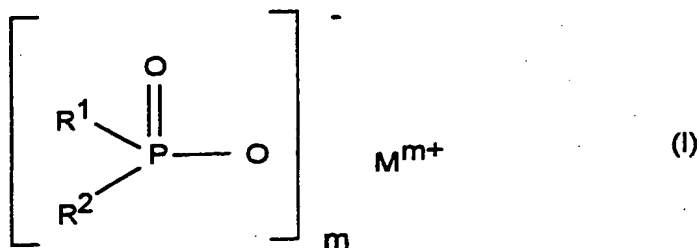
Polymere werden häufig dadurch flammwidrig ausgerüstet, daß man diesen phosphorhaltige oder halogenhaltige Verbindungen oder Gemische davon zusetzt. Auch Gemische von phosphor- und stickstoffhaltigen Verbindungen werden oft als Flammhemmer verwendet.

Alkalisalze von Phosphinsäuren sind bereits als flammhemmende Zusätze für Polyester vorgeschlagen (DE-A-2 252 258). Sie müssen in Mengen bis zu 30 Gew.-% eingebracht werden und haben zum Teil einen ungünstigen korrosionsfördernden Einfluß auf die Verarbeitungsmaschinen.

Weiterhin sind die Salze von Phosphinsäuren mit einem Alkalimetall oder einem Metall aus der zweiten oder dritten Haupt- oder Nebengruppe des Periodensystems zur Herstellung flammwidriger Polyamid-Formmassen eingesetzt worden, insbesondere die Zinksalze (DE-A-2 447 727).

Calcium- und Aluminiumphosphinate haben sich in Polyestern als besonders wirksam erwiesen (EP-A-699 708). Allerdings ist die Herstellung dieser Phosphinate im technischen Maßstab relativ aufwendig und teuer, was die Einsatzmöglichkeiten der Produkte als Flammhemmer für Kunststoffe sehr stark limitiert.

3

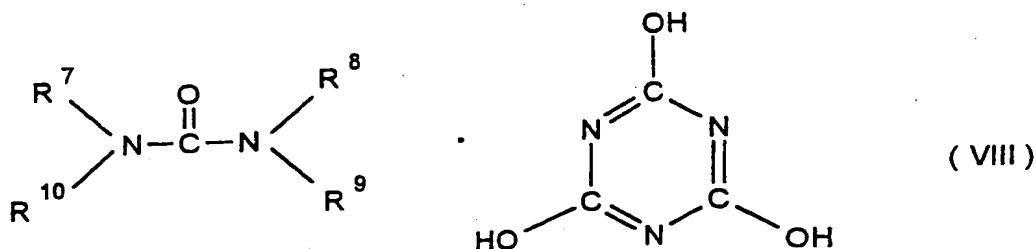


worin

- $\text{R}^1, \text{R}^2$   $\text{C}_1\text{-C}_6\text{-Alkyl}$ , vorzugsweise  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-Alkyl}$ , linear oder verzweigt, z.B. Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-Butyl, tert.-Butyl, n-Pentyl; Phenyl;
- $\text{R}^3$   $\text{C}_1\text{-C}_{10}\text{-Alkylen}$ , linear oder verzweigt, z.B. Methylen, Ethylen, n-Propylen, iso-Propylen, n-Butylen, tert.-Butylen, n-Pentylen, n-Octylen, n-Dodecylen;
- $\text{C}_6\text{-C}_{10}\text{-Arylen}$ , z.B. Phenylen, Naphthylen; -Alkylarylen, z.B. Methylphenylen, Ethylphenylen, tert.-Butylphenylen, Methyl-naphththylen, Ethyl-naphthylen, tert.-Butylnaphthylen; -Arylalkylen, z.B. Phenylmethylen, Phenyl-ethylen, Phenyl-propylen, Phenyl-butylen;
- $\text{M}$  Calcium-, Aluminium-, Zink-, vorzugsweise Aluminium-Ionen;
- $m$  2 oder 3;
- $n$  1 oder 3;
- $x$  1 oder 2

bedeuten,

und die als Komponente B eine Stickstoffverbindung der Formel (III) bis (VIII)



worin  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  und  $\text{R}^6$  folgende Bedeutung haben können: Wasserstoff,  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkyl,  $\text{C}_5$ - $\text{C}_{16}$ -Cycloalkyl oder -Alkylcycloalkyl, möglicherweise substituiert mit einer Hydroxy- oder einer  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Hydroxyalkyl-Funktion,  $\text{C}_2$ - $\text{C}_8$ -Alkenyl,  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkoxy, -Acyl, -Acyloxy,  $\text{C}_6$ - $\text{C}_{12}$ -Aryl sowie  $-\text{O}-\text{R}^4$  und  $-\text{N}(\text{R}^4)\text{R}^5$  (ausgenommen Melamin,  $\text{R}^4$  bis  $\text{R}^6 = \text{H}$ ) bzw. N-alicyclisch oder N-aromatisch. N-alicyclisch bezeichnet in diesem Fall ringförmige N-Verbindungen wie Pyrrolidin, Piperidin, Imidazolidin, Piperazin usw., N-aromatisch bezeichnet heteroaromatische Ringverbindungen wie Pyrrol, Pyridin, Imidazol, Pyrazin usw..

$\text{R}^7$ ,  $\text{R}^8$ ,  $\text{R}^9$ ,  $\text{R}^{10}$  und  $\text{R}^{11}$  kennzeichnen die gleichen Gruppen wie  $\text{R}^4$  bis  $\text{R}^6$ , mit Ausnahme der Substituenten  $-\text{N}(\text{R}^4)\text{R}^5$ , N-alicyclisch und N-aromatisch.

Im folgenden bezeichnet der Begriff "Phosphinsäuresalz" Salze der Phosphin- und Diphosphinsäuren und deren Polymere.

Die Phosphinsäuresalze, die in wäßrigem Medium hergestellt werden, sind im wesentlichen monomere Verbindungen. In Abhängigkeit von den Reaktionsbedingungen können unter Umständen auch polymere Phosphinsäuresalze entstehen.

Geeignete Phosphinsäuren als Bestandteil der Phosphinsäuresalze sind beispielsweise:

Dimethylphosphinsäure, Ethyl-methylphosphinsäure, Diethylphosphinsäure, Methyl-n-propyl-phosphinsäure, Methan-di(methylphosphinsäure), Benzol-1,4-

Propylen-Copolymere, LDPE/Ethylen-Vinylacetat-Copolymere, LDPE/Ethylen-Acrylsäure-Copolymere, LLDPE/Ethylen-Vinylacetat-Copolymere, LLDPE/Ethylen-Acrylsäure-Copolymere und alternierend oder statistisch aufgebaute Polyalkylen/Kohlenstoffmonoxid-Copolymere und deren Mischungen mit anderen Polymeren wie z.B. Polyamiden.

4. Polystyrol, Poly(p-methylstyrol), Poly-( $\alpha$ -methylstyrol).
5. Copolymere von Styrol oder  $\alpha$ -Methylstyrol mit Dienen oder Acrylderivaten, wie z.B. Styrol-Butadien, Styrol-Acrylnitril, Styrol-Alkylmethacrylat, Styrol-Butadien-Alkylacrylat und -methacrylat, Styrol-Maleinsäureanhydrid, Styrol-Acrylnitril-Methacrylat; Mischungen von hoher Schlagzähigkeit aus Styrol-Copolymeren und einem anderen Polymer, wie z.B. einem Polyacrylat, einem Dien-Polymeren oder einem Ethylen-Propylen-Dien-Terpolymeren; sowie Block-Copolymere des Styrols, wie z.B. Styrol-Butadien-Styrol, Styrol-Isopren-Styrol, Styrol-Ethylen/Butylen-Styrol oder Styrol-Ethylen/Propylen-Styrol.
6. Pfropfcopolymere von Styrol oder  $\alpha$ -Methylstyrol, wie z.B. Styrol auf Polybutadien, Styrol auf Polybutadien-Styrol- oder Polybutadien-Acrylnitril-Copolymere, Styrol und Acrylnitril (bzw. Methacrylnitril) auf Polybutadien; Styrol, Acrylnitril und Methylemethacrylat auf Polybutadien; Styrol und Maleinsäureanhydrid auf Polybutadien; Styrol, Acrylnitril und Maleinsäureanhydrid oder Maleinsäureimid auf Polybutadien; Styrol und Maleinsäureimid auf Polybutadien; Styrol und Alkylacrylate bzw. Alkylmethacrylate auf Polybutadien, Styrol und Acrylnitril auf Ethylen-Propylen-Dien-Terpolymeren, Styrol und Acrylnitril auf Polyalkylacrylaten oder Polyalkylmethacrylaten, Styrol und Acrylnitril auf Acrylat-Butadien-Copolymeren, sowie deren Mischungen mit den unter 5) genannten Copolymeren, wie sie z.B. als sogenannte ABS-, MBS-, ASA- oder AES-Polymere bekannt sind.
7. Halogenhaltige Polymere, wie z.B. Polychloropren, Chlorkautschuk, chloriertes und bromiertes Copolymer aus Isobutylen-Isopren (Halobutylkautschuk), chloriertes oder chlorsulfoniertes Polyethylen, Copolymere von Ethylen und

Terephthalsäure und gegebenenfalls einem Elastomer als Modifikator, z.B. Poly-2,4,4-trimethylhexamethylen-terephthalamid oder Poly-m-phenylen-isophthalamid. Block-Copolymere der vorstehend genannten Polyamide mit Polyolefinen, Olefin-Copolymeren, Ionomeren, oder chemisch gebundenen oder gepfropften Elastomeren; oder mit Polyethern, wie z.B. mit Polyethylenglykol, Polypropylenglykol oder Polytetramethylenglykol. Ferner mit EPDM oder ABS modifizierte Polyamide oder Copolyamide; sowie während der Verarbeitung kondensierte Polyamide ("RIM-Polyamidsysteme").

14. Polyhamstoffe, Polyimide, Polyamidimide, Polyetherimide, Polyesterimide, Polyhydantoine und Polybenzimidazole.

15. Polyester, die sich von Dicarbonsäuren und Dialkoholen und/oder von Hydroxycarbonsäuren oder den entsprechenden Lactonen ableiten, wie Polyethylenterephthalat, Polybutylenterephthalat, Poly-1,4-dimethylolcyclohexanterephthalat, Polyhydroxybenzoate, sowie Block-Polyether-ester, die sich von Polyethern mit Hydroxylendgruppen ableiten; ferner mit Polycarbonaten oder MBS modifizierte Polyester.

16. Polycarbonate und Polyester carbonate.

17. Polysulfone, Polyethersulfone und Polyetherketone.

18. Mischungen (Polyblends) der vorgenannten Polymeren, wie z.B. PP/EPDM, Polyamid/EPDM oder ABS, PVC/EVA, PVC/ABS, PVC/MBS, PC/ABS, PBTP/ABS, PC/ASA, PC/PBT, PVC/CPE, PVC/Acrylate, POM/thermoplastisches PUR, PC/thermoplastisches PUR, POM/Acrylat, POM/MBS, PPO/HIPS, PPO/PA 6.6 und Copolymere.

Die Menge des den Polymeren zuzusetzenden Phosphinsäuresalzes der allgemeinen Formel I oder des Diphosphinsäuresalzes der Formel II kann innerhalb weiter Grenzen variieren. Im allgemeinen verwendet man 1 bis 30

(Formel IV,  $R^7 = R^8 = R^9 = -CH_2-CH_2-OH$ ), Allantoin (Formel V,  $R^7 = R^8 = R^9 = R^{10} = R^{11} = H$ ), Glycoluril (Formel VI,  $R^7 = R^8 = R^9 = R^{10} = H$ ) sowie Melamincyanurat, Melaminphosphat, Dimelaminphosphat und Melaminpyrophosphat (alle Typ Formel VII) und Harnstoffcyanurat (Typ Formel VIII).

Die als Komponente B eingesetzten Stickstoffverbindungen werden, z. T. industriell, nach bekannten Verfahren hergestellt.

Die Menge der den Polymeren zuzusetzenden Stickstoffverbindung (Komponente B) kann innerhalb weiter Grenzen variieren. Im allgemeinen verwendet man 1 bis 30 Gew.-% bezogen auf das fertige Polymercompound. Die optimale Menge hängt von der Natur des Polymeren, der Art des eingesetzten Phosphinats (Komponente A) sowie vom Typ der Stickstoffverbindung selbst ab und kann durch Versuche leicht bestimmt werden. Bevorzugt sind 3 bis 20, insbesondere 5 bis 15 Gew.-%.

Bevorzugte thermoplastische Polymere sind technische Kunststoffe wie z.B. Polystyrol-HI (mit erhöhter Schlagzähigkeit, s. Polymere unter Pkt. 5), Polyphenylenether, Polyamide, Polyester, Polycarbonate und Blends bzw. Polyblends wie ABS oder PC/ABS.

Besonders bevorzugte Polymere für die Verwendung der erfindungsgemäßen synergistischen Flammenschutzmittel-Kombination sind Polyester. Dies sind Polymere, die sich wiederholende, über eine Estergruppe verbundene Einheiten in der Polymerkette enthalten. Besonders geeignete Polyester sind beispielsweise in "Ullmann's encyclopedia of industrial chemistry, ed. Barbara Elvers, Vol. 21 A, Kapitel 'Polyesters' (S. 227-251), VCH, Weinheim-Basel-Cambridge-New York 1992" beschrieben, worauf ausdrücklich Bezug genommen wird.



## Beispiele

### 1. Eingesetzte Komponenten

Handelsübliche Polymere (Granulat):

Polybutylenterephthalat (PBT-GV): Celanex 2300 GV1/30 (Fa. Hoechst Celanese, USA) enthält 30 % Glasfasern.

(PBT): Celanex 2500 (Fa. Hoechst Celanese, USA) enthält keine Füll- bzw. Verstärkungsstoffe.

Polyethylenterephthalat (PET-GV): Impet 2600 GV1/30 (Fa. Hoechst AG, D) enthält 30 % Glasfasern.

(PET): Polyclear T 86 (Fa. Trevira GmbH, D) enthält keine Füll- bzw. Verstärkungsstoffe.

Polyamid 6 (PA 6): Durethan B29 (Fa. Bayer AG, D) enthält keine Füll- bzw. Verstärkungsstoffe

ABS-Polymer: Novodur P2X (Fa. Bayer AG, D) enthält keine Füll- bzw. Verstärkungsstoffe.

Polypropylen (PP): Hostalen PPU 1080 (Fa. Hoechst AG, D)

Flammschutzmittelkomponenten (pulverförmig)

Aluminiumsalz der Dimethylphosphinsäure, im folgenden als DMPAL bezeichnet

Aluminiumsalz der Methylethylphosphinsäure, im folgenden als MEPAL bezeichnet

Aluminiumsalz der Methylpropylphosphinsäure, im folgenden als MPPAL bezeichnet

Stickstoffhaltige Synergisten (pulverförmig):

Allantoin (Soc. Francaise Hoechst, F)

Benzoguanamin (Fa. SKW, D)

Glycoluril (Soc. Francaise Hoechst, F)

Harnstoffcyanurat (Chemie Linz, A)

Tabellen 2 bis 8 aufgelistet. Alle Mengenangaben sind als Gew.-% aufgeführt und beziehen sich auf das fertige Polymercompound einschließlich FlammSchutzausrüstung.

Tabelle 1:

Vergleichsbeispiele. Aluminiumsalze von Phosphinsäuren als alleinige FlammSchutzmittelkomponente in PBT, PET, PA 6 und ABS.

Polymer	MEPAL [%]	DMPAL [%]	MPPAL [%]	AO 1 [%]	AO 2 [%]	GL [%]	Klasse nach UL 94 (1,5 mm)	LOI [%]
PBT- GV	15			0,15	0,2		V1	48,5
PBT- GV	20			0,15	0,2		V0 <sup>*)</sup>	49,5
PBT- GV		20					V0	46,0
PBT- GV			20	0,15	0,2		V0	50,0
PBT	10						V2	
PBT	15						V0	
PET- GV	5			0,15	0,2		V2	30,0
PET- GV	10			0,15	0,2		V0	36,5
PET	5			0,15	0,2		V2	28,0
PET	10			0,15	0,2		V0	41,5
PA 6	15					0,5	V0	31,0
ABS	30						n.k. <sup>**)</sup>	52,5
PP	30						n.k. <sup>**)</sup>	

<sup>\*)</sup> Klasse auch bei Prüfkörpern mit einer Dicke von 0,8 mm erreicht.

<sup>\*\*) n.k.</sup> = nicht klassifizierbar

Tabelle 3:

Beispiele. MEPAL in Kombination mit stickstoffhaltigen Synergisten in PBT.

MEPAL [%]	Synergist	Menge Synergist [%]	AO 1 [%]	AO 2 [%]	Klasse nach UL 94 (1,5 mm)	LOI [%]
8	Glycoluril	7	0,15	0,2	V0 <sup>*)</sup>	33,5
5	Melamincyanurat	5	0,15	0,2	V2	25,0
8	Melamincyanurat	7	0,15	0,2	V0	34,0
8	TPS-THEIC	7	0,15	0,2	V0	36,5

<sup>\*)</sup> Klasse auch bei Prüfkörpern mit einer Dicke von 0,8 mm erreicht.

Tabelle 4:

Beispiele. MEPAL in Kombination mit stickstoffhaltigen Synergisten in PET-GV.

MEPAL [%]	Synergist	Menge Synergist [%]	AO 1 [%]	AO 2 [%]	Klasse nach UL 94 (1,5 mm)	LOI [%]
6	Benzoguanamin	4	0,15	0,2	V2	34,0
6	Glycoluril	4	0,15	0,2	V2	29,0
6	Melamincyanurat	4	0,15	0,2	V0	32,5
6	Melaminphosphat	4	0,15	0,2	V2	35,5

Tabelle 5:

Beispiele. MEPAL in Kombination mit stickstoffhaltigen Synergisten in PET.

MEPAL [%]	Synergist	Menge Synergist [%]	AO 1 [%]	AO 2 [%]	Klasse nach UL 94 (1,5 mm)	LOI [%]
6	Benzoguanamin	4	0,15	0,2	V2	27,5
6	Glycoluril	4	0,15	0,2	V2	26,5
6	Melamincyanurat	4	0,15	0,2	V2	27,0

## Patentansprüche

1. Synergistische Flammenschutzmittel-Kombination für thermoplastische Polymere, insbesondere für Polyester, enthaltend als Komponente A ein Phosphinsäuresalz der in der Beschreibung definierten Formeln (I) und/oder ein Diphosphinsäuresalz der Formel (II) und/oder deren Polymere, worin
 

$R^1, R^2$	$C_1-C_6$ -Alkyl, vorzugsweise $C_1-C_4$ -Alkyl, linear oder verzweigt;
$R^3$	$C_1-C_{10}$ -Alkylen, linear oder verzweigt; $C_6-C_{10}$ -Arylen, -Alkylarylen, -Arylalkylen;
$M$	Calcium-, Aluminium-, Zink-, vorzugsweise Aluminium-Ionen;
$m$	2 oder 3;
$n$	1 oder 3;
$x$	1 oder 2

 bedeuten,  
 und als Komponente B eine Stickstoffverbindung der in der Beschreibung definierten Formeln (III) bis (VIII) oder ein Gemisch hiervon, worin
 

$R^4$ bis $R^6$	Wasserstoff, $C_1-C_8$ -Alkyl, $C_5-C_{16}$ -Cycloalkyl oder -Alkylcycloalkyl, möglicherweise substituiert mit einer Hydroxy- oder einer $C_1-C_4$ -Hydroxyalkyl-Funktion, $C_2-C_8$ -Alkenyl, $C_1-C_8$ -Alkoxy, -Acyl, -Acyloxy, $C_6-C_{12}$ -Aryl sowie -O- $R^4$ und -N( $R^4$ ) $R^5$ oder N-alicyclisch oder N-aromatisch bedeuten, mit der Maßgabe, daß $R^4$ bis $R^6$ nicht gleichzeitig Wasserstoff sind,
$R^7$ bis $R^{11}$	die gleichen Gruppen kennzeichnen wie $R^4$ bis $R^6$ , mit Ausnahme der Substituenten -N( $R^4$ ) $R^5$ , N-alicyclisch und N-aromatisch.
  
2. Flammenschutzmittel-Kombination gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei der Komponente B um Benzoguanamin, Tris(hydroxyethyl)isocyanurat, Allantoin, Glycoluril, Melamincyanurat,

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 97/01664

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 C08K5/5313 C08K5/34 C08L67/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 699 708 A (HOECHST) 6 March 1996 cited in the application see claims 1-3 ---	1,5,7
A	FR 2 422 698 A (PENNWALT) 9 November 1979 see claims 1,2,10 ---	1,3,5,7
A	US 3 594 347 A (LAZARUS ET AL.) 20 July 1971 see column 2, line 19 - line 42; claims 1,6,12,20 ---	1,5,7
A	DE 22 52 258 A (HOECHST) 9 May 1974 cited in the application see page 5, paragraph 4; claim 1; examples --- -/--	1,7

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 July 1997

Date of mailing of the international search report

- 4. 08. 97

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Engel, S

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/01664

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 699708 A	06-03-96	DE 4430932 A JP 8073720 A	07-03-96 19-03-96
FR 2422698 A	09-11-79	US 4180495 A BE 875530 A DE 2915116 A GB 2021598 A JP 55007878 A NL 7900148 A US 4208321 A US 4208322 A	25-12-79 31-07-79 25-10-79 05-12-79 21-01-80 16-10-79 17-06-80 17-06-80
US 3594347 A	20-07-71	NONE	
DE 2252258 A	09-05-74	AT 336895 B AU 476909 B AU 6171973 A BE 806521 A CA 1021086 A CH 555869 A FR 2204659 A GB 1433210 A JP 49074736 A NL 7314432 A US 3900444 A ZA 7308245 A	25-05-77 07-10-76 24-04-75 25-04-74 15-11-77 15-11-74 24-05-74 22-04-76 18-07-74 29-04-74 19-08-75 25-09-74
EP 6568 A	09-01-80	DE 2827867 A JP 55005979 A	17-01-80 17-01-80

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

### Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/01664

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 6 C08K5/5313 C08K5/34 C08L67/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  
IPK 6 C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

### C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 699 708 A (HOECHST) 6.März 1996 in der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche 1-3 ---	1,5,7
A	FR 2 422 698 A (PENNWALT) 9.November 1979 siehe Ansprüche 1,2,10 ---	1,3,5,7
A	US 3 594 347 A (LAZARUS ET AL.) 20.Juli 1971 siehe Spalte 2, Zeile 19 - Zeile 42; Ansprüche 1,6,12,20 ---	1,5,7
A	DE 22 52 258 A (HOECHST) 9.Mai 1974 in der Anmeldung erwähnt siehe Seite 5, Absatz 4; Anspruch 1; Beispiele --- -/--	1,7

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

- \* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- \* "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- \* "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- \* "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt wird, soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- \* "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- \* "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber vor dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

**Datum des Abschlusses der internationalen Recherche**

16. Juli 1997

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

- 4. 08. 97

Name und Postanschrift der internationale Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+ 31-70) 340-3016

**Bevollmächtigter Bediensteter**

Engel, S

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/01664

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 699708 A	06-03-96	DE 4430932 A JP 8073720 A	07-03-96 19-03-96
FR 2422698 A	09-11-79	US 4180495 A BE 875530 A DE 2915116 A GB 2021598 A JP 55007878 A NL 7900148 A US 4208321 A US 4208322 A	25-12-79 31-07-79 25-10-79 05-12-79 21-01-80 16-10-79 17-06-80 17-06-80
US 3594347 A	20-07-71	KEINE	
DE 2252258 A	09-05-74	AT 336895 B AU 476909 B AU 6171973 A BE 806521 A CA 1021086 A CH 555869 A FR 2204659 A GB 1433210 A JP 49074736 A NL 7314432 A US 3900444 A ZA 7308245 A	25-05-77 07-10-76 24-04-75 25-04-74 15-11-77 15-11-74 24-05-74 22-04-76 18-07-74 29-04-74 19-08-75 25-09-74
EP 6568 A	09-01-80	DE 2827867 A JP 55005979 A	17-01-80 17-01-80